

PATENT OFFICE  
JAPANESE GOVERNMENT

This is to certify that the annexed is a true copy  
of the following application as filed with this Office.

Date of Application: January 27, 2003

Application Number: Japanese Patent Application  
No. 2003-016914

Applicant(s): SUZUKI MOTOR CORPORATION

December 12, 2003

Commissioner,  
Patent Office Yasuo IMAI  
(seal)

Certificate No. 2003-3103638

日本国特許庁  
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出願年月日 2003年 1月27日  
Date of Application:

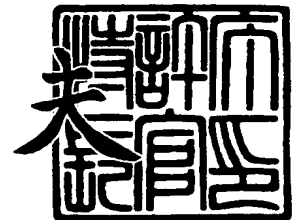
出願番号 特願2003-016914  
Application Number:  
[ST. 10/C]: [JP 2003-016914]

出願人 スズキ株式会社  
Applicant(s):

2003年12月12日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

今井 康



出証番号 出証特2003-3103638

【書類名】 特許願

【整理番号】 A02-0078

【あて先】 特許庁長官 太田 信一郎 殿

【国際特許分類】 C08J 5/00

【発明者】

    【住所又は居所】 静岡県浜松市高塚町 3 0 0 番地 スズキ株式会社内

    【氏名】 伊藤 二三男

【特許出願人】

    【識別番号】 000002082

    【氏名又は名称】 スズキ株式会社

【代理人】

    【識別番号】 100099623

    【弁理士】

    【氏名又は名称】 奥山 尚一

【選任した代理人】

    【識別番号】 100096769

    【弁理士】

    【氏名又は名称】 有原 幸一

【選任した代理人】

    【識別番号】 100107319

    【弁理士】

    【氏名又は名称】 松島 鉄男

【手数料の表示】

    【予納台帳番号】 086473

    【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

    【物件名】 明細書 1

    【物件名】 図面 1

    【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 0002293

【プルーフの要否】 要

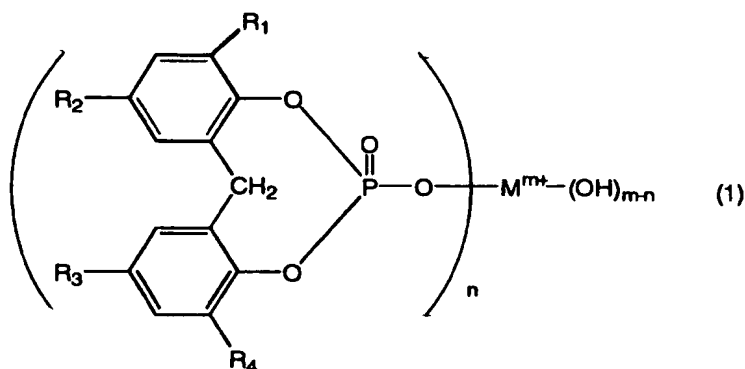
【書類名】 明細書

【発明の名称】 ポリ乳酸系ポリマー樹脂組成物とその成形品

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 ポリ乳酸系ポリマーと、一般式

【化 1】



(式中、 $\text{R}_1$ 、 $\text{R}_2$ 、 $\text{R}_3$ 、 $\text{R}_4$ は、同一もしくは異なってもよい水素又はアルキルを表す。 $\text{M}$ は金属原子を表し、 $m$ 、 $n$ は1～3の整数を表す。)で示される構造のリン酸金属塩の少なくとも一種類とを含んでなるポリ乳酸系ポリマー樹脂組成物。

【請求項 2】 前記リン酸金属塩が、リン酸 2, 2-メチレンビス (4, 6-ジ-*tert*ブチルフェニル) ナトリウム、又はリン酸 2, 2-メチレンビス (4, 6-ジ-*tert*ブチルフェニル) 水酸化アルミニウムである請求項 1 に記載のポリ乳酸系ポリマー樹脂組成物。

【請求項 3】 前記リン酸金属塩が、繊維状又は配向性を持つ形状である請求項 1 または 2 に記載のポリ乳酸系ポリマー樹脂組成物。

【請求項 4】 前記リン酸金属塩が、前記ポリ乳酸系ポリマー樹脂組成物全体に対し、0.1～2重量%で含まれている請求項 1～3 のいずれかに記載のポリ乳酸系ポリマー樹脂組成物。

【請求項 5】 タルク、黒鉛、シリカからなる群から選択される一以上の充填剤をさらに含む請求項 1～4 のいずれかに記載のポリ乳酸系ポリマー樹脂組成物。

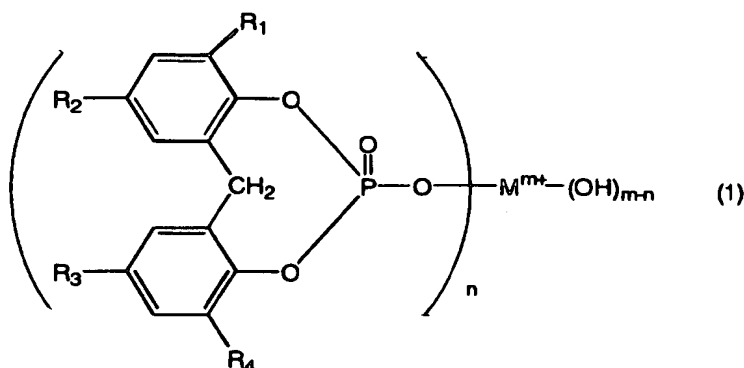
【請求項 6】 脂肪酸アミドをさらに含む請求項 1～5 のいずれかに記載の

ポリ乳酸系ポリマー樹脂組成物。

【請求項 7】 結晶化度が 25% 以上であって、該結晶の面間隔が 5.2 ～ 5.5 Å であり、該結晶子サイズが 400 Å 以下である結晶構造を有する、請求項 1 ～ 6 のいずれかに記載のポリ乳酸系ポリマー樹脂組成物から製造されるポリ乳酸系ポリマー樹脂成形品。

【請求項 8】 ポリ乳酸系ポリマーと、一般式

【化 2】



(式中、 $R_1$ 、 $R_2$ 、 $R_3$ 、 $R_4$ は、同一もしくは異なってもよい水素又はアルキルを表す。 $M$ は金属原子を表し、 $m$ 、 $n$ は 1 ～ 3 の整数を表す。) で示される構造のリン酸金属塩の少なくとも一種類とを混練するステップと、

混練された組成物を溶融し、金型に鋳込むステップと、

前記金型を前記ポリ乳酸系ポリマーの結晶化温度範囲内の温度に保持して成形するステップと

を含んでなるポリ乳酸系ポリマー樹脂成形品の製造方法。

【請求項 9】 前記成形するステップの後に、前記金型の温度を前記結晶化温度範囲内の温度で離型するステップをさらに含む請求項 8 に記載のポリ乳酸系ポリマー樹脂成形品の製造方法。

【請求項 10】 前記ポリ乳酸系ポリマーの結晶化温度範囲が、80℃～140℃である請求項 8 または 9 に記載のポリ乳酸系ポリマー樹脂成形品の製造方法。

【請求項 11】 請求項 8 ～ 10 のいずれかに記載のポリ乳酸系ポリマー樹脂成形品の製造方法により製造されたポリ乳酸系ポリマー樹脂成形品。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

## 【産業上の利用分野】

本発明は、生分解性プラスチック成形品、詳しくは、ポリ乳酸系ポリマーを含むポリ乳酸系ポリマー樹脂組成物及びポリ乳酸系ポリマー樹脂成形品の製造方法に関する。さらに詳しくは、本発明は、ポリ乳酸系ポリマーを主成分とする、短い成形サイクルで高結晶化し、荷重たわみ温度を向上させた、耐熱性に優れるポリ乳酸系ポリマー樹脂組成物及びポリ乳酸系ポリマー樹脂成形品の製造方法に関する。

## 【0002】

## 【従来技術】

近年、環境問題から自動車部品のリサイクル率の向上と、環境負荷の低い材料の使用が望まれている。このような状況の中、ポリ乳酸等の脂肪族ポリエステルは、水の存在下で容易に加水分解する特性により、廃棄後に環境を汚染することなく分解する環境に優しい材料として注目されている。特に、ポリ乳酸は原料がトウモロコシ等のデンプンから製造される再生可能な材料であり、環境に優しいため、自動車部品や様々な部材として使用するのに有効である。

## 【0003】

しかし、ポリ乳酸系ポリマーは、自動車部品として利用するには耐熱性に問題がある。ポリ乳酸系ポリマー樹脂成形品は通常の成形方法である、混練した樹脂組成物を熔融した後に金型をガラス転移温度（約60℃）以下として成形する方法によると、ほとんど結晶化しない。そのため、ガラス転移温度近傍の温度に曝されると弾性率が極端に低下し、変形してしまう。耐熱性を上げるには、成形後に熱処理することで結晶化度を上げて、耐熱性を向上させる方法があるが、結晶化に伴い大きく寸法変化が起こるという問題がある。また、金型内で結晶化させる方法では、結晶化に長時間を要し、生産性が劣るという問題がある。これらの理由から、ポリ乳酸系ポリマーは、高温条件に曝される自動車部品やその他の耐熱性を必要とする成形品での利用分野が制限されていた。

## 【0004】

ポリ乳酸に耐熱性を付与するための従来の技術が、特許文献 1 に開示されている。かかる技術は、通常の成形加工技術とは異なり、成形加工後に金型から製品を直に取り出さずに、成形加工時に金型内に製品を入れたまま、長い時間をかけて  $T_c$ （結晶化温度）近傍の温度に保持することにより、ポリ乳酸成形品を高度に結晶化する技術であるが、結晶化が必ずしも充分でない場合があり、所望の耐熱性を得ることができなかった。

#### 【0005】

その他に、通常の成形加工技術により成形加工した後に、成形品をアニール処理（熱処理）することにより、ポリ乳酸成形品を高度に後結晶化する方法が開示されている。しかし、かかる方法においては、成形品が結晶化する過程で変形する場合があります、寸法精度が必要な部品や成形品表面の意匠性が必要な部品では利用できないという問題があった。

#### 【0006】

さらには、ポリ乳酸に耐熱性を付与するための上述の成形加工技術は、一般的な成形加工技術の場合と比較して、工程に特殊な条件を必要としたり、あるいは工程に極めて長時間を要するために製造コストが高くなり、必ずしも実用的なものではなかった。

#### 【0007】

汎用高分子材料の結晶化速度を上げる技術の具体例としては、例えば、特許文献 2 に、PET の結晶化を促進するために、核剤（結晶化を促進させるための添加剤、結晶化核剤）としてテレフタル酸とレゾルシンを主な構成単位とする全芳香族ポリエステル微粉末を添加する方法が開示されている。

#### 【0008】

特許文献 3 には、分解性高分子材料への耐熱性付与の方法として、ラクチド熱可塑性プラスチックに、シリカ、カオリナイトのような無機化合物の充填剤を添加することにより、硬度、強度、温度抵抗性の性質を変える技術が開示されている。その実施例には、L, DL-ラクチド共重合体に、核剤として、乳酸カルシウム 5 重量%を添加し、170℃の加熱ロールで 5 分間ブレンドすることにより、結晶化度が上昇したシートを製造する技術が開示されている。この高結晶性シ



ートは、剛性や強度に優れているが、透明度が低く曇っていると開示されている。本発明者らは、この技術を実際にポリ乳酸に応用してみた。すなわち、ポリ乳酸に、核剤として、シリカ、カオリナイト、タルクを添加して射出成形を試みたが、結晶化速度が遅く結晶化度も不十分であり、また、高分子成分が劣化し、成形加工品が脆くなった。

#### 【0009】

特許文献4には、分解性高分子に、核剤として、乳酸塩や安息香酸塩を添加する方法が開示されている。その実施例には、ポリラクチドコポリマーに、核剤として、1%の乳酸カルシウムを配合し、2分間の滞留時間で、約85℃に保持した型で射出成形し、さらに、その後型中で、約110～135℃でアニーリングする技術が開示されている。そこで、本発明者らは、この技術を実際にポリ乳酸に応用してみた。すなわち、ポリ乳酸に、核剤として、乳酸カルシウムや安息香酸ナトリウムを添加して射出成形を試みたが、結晶化速度が遅く結晶化度も不十分であり、また、高分子成分が劣化し、成形加工品が脆くなった。

#### 【0010】

特許文献5には、ポリ-L-ラクチドに、核剤として、ポリグリコール酸及びその誘導体を添加し、射出成形時の冷却金型温度をT<sub>g</sub>（ここで、「T<sub>g</sub>」とは、ガラス転移温度、又は、ガラス転移点を意味する。以下同様。）以上に上げることにより、結晶化速度を上げ、成形サイクル時間を短縮させ、かつ、優れた力学的性質を有する成形物を製造する方法が開示されている。その射出成形の実施例として、冷却時間60秒において、核剤非添加の場合の結晶化度は、22.6%であるのに対し、核剤添加の場合には、45.5%であると開示されている。本発明者らは、この技術を実際にポリ乳酸に応用し、ポリ乳酸に、核剤として、ポリグリコール酸を添加し、射出成形時の冷却金型温度をT<sub>g</sub>以上に上げることにより、射出成形を試みた。しかしながら、金型温度がT<sub>g</sub>点以上の条件では、成形がうまくいかなかった。

#### 【0011】

##### 【特許文献1】

特開平10-120887号公報

## 【特許文献 2】

特開昭 6 0 - 8 6 1 5 6 号公報

## 【特許文献 3】

特表平 4 - 5 0 4 7 3 1 号公報

(国際公開第 9 0 / 0 1 5 2 1 号パンフレット)

## 【特許文献 4】

特表平 6 - 5 0 4 7 9 9 号公報

(国際公開第 9 2 / 0 4 4 1 3 号パンフレット)

## 【特許文献 5】

特開平 4 - 2 2 0 4 5 6 号公報

## 【0 0 1 2】

## 【発明が解決しようとする課題】

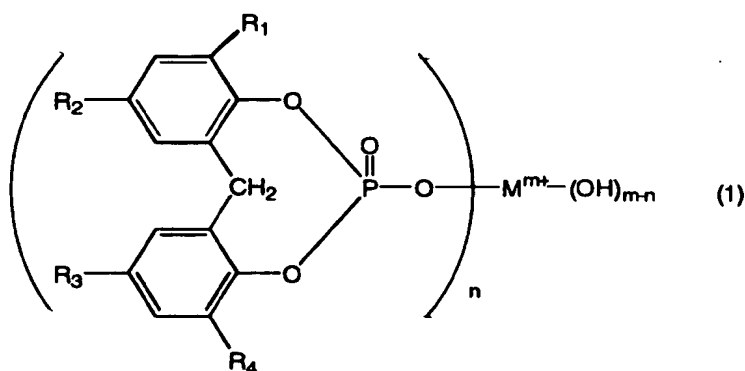
耐熱性、耐衝撃性が向上し、剛性を有する生分解性のポリ乳酸系ポリマー樹脂組成物及びポリ乳酸系ポリマー樹脂成形品と、成形性が改良されたポリ乳酸系ポリマー樹脂成形品の製造方法を提供することを目的とする。

## 【0 0 1 3】

## 【課題を解決するための手段】

本発明は、上記課題を解決するためになされたものであって、ポリ乳酸系ポリマーに、一般式、

## 【化 3】



(式中、 $\text{R}_1$ 、 $\text{R}_2$ 、 $\text{R}_3$ 、 $\text{R}_4$ は同一もしくは異なる水素又はアルキルを表す。 $\text{M}$ は金属原子を表し、 $m$ 、 $n$ は1～3の整数を表す。)で示される構造のリン酸金

属塩を少なくとも一種配合したポリ乳酸系ポリマー樹脂組成物を提供する。上記リン酸金属塩の具体例としては、リン酸 2, 2-メチレンビス(4, 6-ジ-tertブチルフェニル)ナトリウム、リン酸 2, 2-メチレンビス(4, 6-ジ-tertブチルフェニル)カリウム、リン酸 2, 2-メチレンビス(4, 6-ジ-tertブチルフェニル)ナトリウム、リン酸 2, 2-メチレンビス(4, 6-ジ-tertブチルフェニル)水酸化アルミニウム、リン酸 2, 2-メチレンビス(4, 6-ジ-tertブチルフェニル)水酸化カルシウム等が挙げられるがこれらには限定されない。

かかるポリ乳酸系ポリマー樹脂組成物からなるポリ乳酸系ポリマー樹脂成形品は、ポリ乳酸系ポリマーを均一で微細な結晶構造とし、結晶化速度を促進することができる。

#### 【0014】

また、本発明は、上述のポリ乳酸系ポリマー樹脂組成物において、リン酸金属塩が特に、リン酸 2, 2-メチレンビス(4, 6-ジ-tertブチルフェニル)ナトリウムまたはリン酸 2, 2-メチレンビス(4, 6-ジ-tertブチルフェニル)水酸化アルミニウムである。かかるポリ乳酸系ポリマー樹脂組成物を用いて、ポリ乳酸系ポリマー樹脂成形品を製造すると、ポリ乳酸系ポリマーの結晶化を促進し、荷重たわみ温度を向上させることができる。

#### 【0015】

特には、上記組成物のうち、リン酸金属塩の形状が繊維状又は配向性を持つ形状であるポリ乳酸系ポリマー樹脂組成物を提供する。かかるポリ乳酸系ポリマー樹脂組成物により成形したポリ乳酸系ポリマー樹脂成形品は弾性率が向上している。また、これらのリン酸金属塩またはリン酸金属塩の混合物が、前記ポリ乳酸系ポリマー樹脂組成物全体に対し、0.1～2重量%で含まれていることが好ましい。

#### 【0016】

また、組成物中に充填剤としてタルク又は黒鉛又はシリカの何れかを含む上述のポリ乳酸系ポリマー樹脂組成物を提供する。このような添加剤を含むことで、ポリ乳酸系ポリマーの結晶化速度が向上し、荷重たわみ温度が向上するという利

点が得られる。さらに、ポリ乳酸系ポリマー樹脂組成物中に脂肪酸アミドを含む上述のポリ乳酸系ポリマー樹脂組成物を提供する。かかるポリ乳酸系ポリマー樹脂組成物を結晶化させて得られた成形品は、ポリ乳酸系ポリマーの耐衝撃性及び荷重たわみ温度が向上しており、耐熱性を要する自動車用部材として使用するのに有効である。

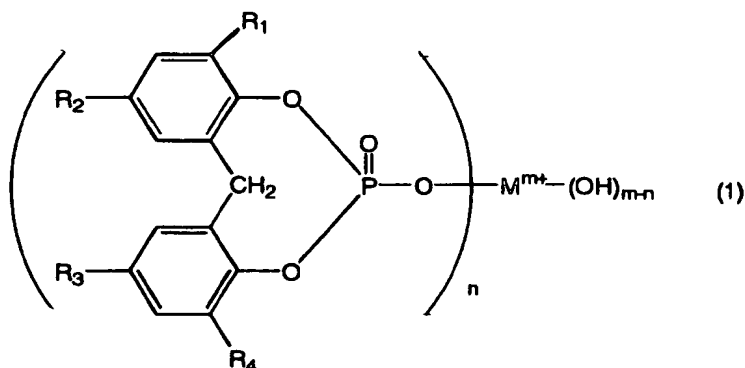
#### 【0017】

さらには、本発明は、結晶化度が25%以上であって、該結晶の面間隔が5.2～5.5 Åであり、該結晶子サイズが400 Å以下である結晶構造を有するポリ乳酸系ポリマー樹脂成形品を提供する。このような結晶構造を有するポリ乳酸系ポリマー樹脂成形品は、耐熱性に優れる。

#### 【0018】

本発明はまた、ポリ乳酸系ポリマーと、一般式

#### 【化4】



(式中、R<sub>1</sub>、R<sub>2</sub>、R<sub>3</sub>、R<sub>4</sub>は、同一もしくは異なってもよい水素又はアルキルを表す。Mは金属原子を表し、m、nは1～3の整数を表す。)で示される構造のリン酸金属塩の少なくとも一種類とを混練するステップと、混練された組成物を熔融し、金型に鋳込むステップと、前記金型を前記ポリ乳酸系ポリマーの結晶化温度範囲内の温度で成形するステップとを含んでなるポリ乳酸系ポリマー樹脂成形品の製造方法を提供する。かかる方法によれば、ポリ乳酸系ポリマーの結晶化度が上がり、荷重たわみ温度が向上する。またウェルドや異種材料の混合による混合ムラの発生を抑制することができる。

#### 【0019】

前記成形するステップの後に、前記金型の温度を結晶化温度範囲内の温度で離型するステップをさらに含むことが好ましい。かかる方法によれば、離型後にも成形品の余熱によって結晶化が進む為、荷重たわみ温度の向上、成形サイクルの短縮が可能となる。また、金型を冷却、加熱する必要が無く熱効率が良い。特に、前記ポリ乳酸系ポリマーの結晶化温度範囲が、約 80℃～140℃であることが好ましい。

#### 【0020】

本発明にかかるポリ乳酸系ポリマー樹脂組成物、それから得られたポリ乳酸系ポリマー樹脂成形品またはそれらの製造方法によれば、耐熱性、耐衝撃性等に優れ、機能面、環境面の両方から、自動車部品として有望なポリ乳酸系ポリマー樹脂成形品を得ることができる。

#### 【0021】

##### 【発明の実施の形態】

以下に、本発明を実施の形態を挙げてさらに詳細に説明する。

#### 【0022】

本発明の第一の実施形態にかかるポリ乳酸系ポリマー樹脂組成物は、ポリ乳酸系ポリマーと、一般式(1)で示される構造のリン酸金属塩の少なくとも一種類とを含んでなるポリ乳酸系ポリマー樹脂組成物である。

#### 【0023】

ここで、ポリ乳酸系ポリマー樹脂組成物とは、ポリ乳酸系ポリマーを成分の一つとして含む樹脂を混合したものであって、複数の成分が混練されてペレット状になっているものでもよく、そのほかの形状でもよい。

#### 【0024】

ポリ乳酸系ポリマーとは、L-乳酸単位ホモポリマー、D-乳酸単位ホモポリマー、L-乳酸単位とD-乳酸単位とからなるランダムコポリマー、L-乳酸単位とD-乳酸単位とからなるブロックコポリマー及びこれらの混合物をいう。さらに、ポリ乳酸の乳酸成分以外の成分として、乳酸成分以外の脂肪族ヒドロキシカルボン酸、脂肪族多価アルコール、脂肪族多塩基酸からなる群より選択された1種又は二種以上のモノマーを成分とするコポリマーを含む。コポリマーは

ランダムポリマー、ブロックポリマーの何れでも良い。また、これらのポリマーと以下に詳述する脂肪族ポリエステルとの混合物を含み、モノマー換算で少なくとも乳酸成分が50重量%以上を含むポリマーを指す。

#### 【0025】

脂肪族ポリエステルとしては脂肪族ヒドロキシカルボン酸、脂肪族多価アルコール、脂肪族多塩基酸からなる群より選択された1種又は二種以上のモノマーを主成分とするホモポリマーやコポリマー及びこれらの混合物が挙げられる。またコポリマーはランダムポリマー、ブロックポリマーが挙げられる。脂肪族ヒドロキシカルボン酸としてはグリコール酸、乳酸、ヒドロキシ酪酸、ヒドロキシ吉草酸、ヒドロキシカプロン酸等が挙げられる。脂肪族多価アルコールとしてはエチレングリコール、プロピレングリコール、ブタンジオール、ヘキサジオール、1,4シクロヘキサジメタノール等が挙げられる。脂肪族多塩基酸としてはシュウ酸、コハク酸、アジピン酸、アゼライン酸、マロン酸、グルタル酸、ドデカンジカルボン酸等、及び無水物が挙げられる。脂肪族ポリエステルの具体例としては、ポリエチレンサクシネート、ポリブチレンサクシネート、ポリ(ε-カプロラクトン)、ポリ(3-ヒドロキシブチレート)、ポリ乳酸等が挙げられる。

#### 【0026】

ポリ乳酸系ポリマーには、添加剤を加えることができる。添加剤としては酸化防止剤、熱安定剤、紫外線安定剤、滑剤、充填剤、帯電防止剤、導電性付与剤、顔料等が挙げられる。

#### 【0027】

一般式(1)で示される構造のリン酸金属塩としては、リン酸2,2-メチレンビス(4,6-ジ-tertブチルフェニル)ナトリウム、リン酸2,2-メチレンビス(4,6-ジ-tertブチルフェニル)カリウム、リン酸2,2-メチレンビス(4,6-ジ-メチルフェニル)ナトリウム、リン酸2,2-メチレンビス(4,6-ジ-tertブチルフェニル)水酸化アルミニウム、リン酸2,2-メチレンビス(4,6-ジ-tertブチルフェニル)水酸化カルシウム等が挙げられるがこれらには限定されない。これらのリン酸金属塩がポリ乳酸系ポリマー中に均一に分散し、安定した多数の結晶核となることで、ポリ乳酸系

ポリマーが結晶化する際に均一で微細な結晶構造を短時間で生成することが可能となり、これにより剛性および荷重たわみ温度が向上する。また、上記リン酸金属塩は、ポリ乳酸系ポリマーの結晶成長を結晶化温度で促進する作用が強いため、この温度に保持したポリ乳酸系ポリマーは、ポリマー自体の結晶成長と、リン酸金属塩との相乗効果により、均一で微細な結晶構造を短時間で生成することが可能となる。

#### 【0028】

特に、リン酸金属塩が、リン酸 2, 2-メチレンビス (4, 6-ジ-tert ブチルフェニル) ナトリウム又はリン酸 2, 2-メチレンビス (4, 6-ジ-tert ブチルフェニル) 水酸化アルミニウムであることが好ましい。これらのリン酸金属塩は、特に、工業的に生産されているため、価格の観点から好ましい。

#### 【0029】

また、リン酸金属塩が、繊維状又は配向性を持つ形状であることが特に好ましい。配向性を持つ形状のリン酸金属塩とは、繊維状、板状、針状など、長径と短径の比または長径と厚さの比が大きい結晶構造を有するリン酸金属塩をいう。繊維状のリン酸金属塩とは、長径と短径の比が 10 以上のリン酸金属塩が絡み合った構造の物をいう。特に、かかる繊維状のリン酸金属塩を用いることが好ましい。

#### 【0030】

これらのリン酸金属塩のうち一種、あるいは二種以上を混合して、ポリ乳酸系ポリマーに対し、0.1～2重量%で混合されているポリ乳酸系ポリマー樹脂組成物であることが好ましく、0.1～0.5重量%で混合されていることがさらに好ましい。リン酸金属塩が 0.1重量%以下では結晶化の効果が十分に得られず、リン酸金属塩が 2重量%より多いと、コスト的に実用的とはいえないからである。また、0.5重量%以下が好ましいのは、0.5重量%で十分に効果が得られ、コスト的にも実用的であるという理由からである。

#### 【0031】

次に、本発明の第一の実施形態にかかるポリ乳酸系ポリマー樹脂組成物を用いた、ポリ乳酸系ポリマー樹脂成形品の製造方法について説明する。かかるポリ乳

酸系ポリマー樹脂成形品の製造方法は、ポリ乳酸系ポリマーと、一般式（１）（式中、 $R_1$ 、 $R_2$ 、 $R_3$ 、 $R_4$ は、同一もしくは異なってもよい水素又はアルキルを表す。 $M$ は金属原子を表し、 $m$ 、 $n$ は１～３の整数を表す。）で示される構造のリン酸金属塩の少なくとも一種類とを混練するステップと、混練された組成物を溶融し、金型に鋳込むステップと、前記金型を前記ポリ乳酸系ポリマーの結晶化温度範囲内として、成形するステップとを含んでなる。

#### 【0032】

次に、上述の材料を混練する。本発明では混練方法は特に制限されず、当業者に知られている混練技術を採用することができる。具体的には、ポリ乳酸系ポリマーのペレットと、リン酸金属塩とを混合し、二軸押出機を使用して混練温度を１６０℃から１９０℃として溶融混練し、ペレット化することができる。または、溶融混練したものをパウダー状とすることもできる。その他にも、単抽の押出機を使用する方法や、ポリ乳酸系ポリマーを押出機等で溶融中にリン酸金属塩を混合するような方法でポリ乳酸系ポリマーのペレットと、リン酸金属塩とを混合することもできる。

#### 【0033】

混練され、ペレット化された材料は、１８０℃～２００℃に溶融され、次いで成形される。本発明において、成形は、射出成形、押し出し成形、ブロー成形、射出ブロー成形、真空圧空成形等により実施することができるが、成形方法は特定の方法には限定されない。溶融された材料が鋳込まれた金型の温度を、ポリ乳酸系ポリマーの結晶化温度に保持して、３０秒～５分かけて成形する。

#### 【0034】

ポリ乳酸系ポリマーの結晶化温度は、約８０～１４０℃であるため、これらの温度範囲内で成形を実施することが好ましい。特に、リン酸金属塩がナトリウム塩の場合には、約１１０～１２０℃で成形を実施することが好ましく、リン酸金属塩がアルミニウム塩の場合には、約１００～１１０℃で成形を実施することが好ましい。

#### 【0035】

また、成形時間については、金型の大きさや成形する樹脂成形品の形状にもよ



るが、30秒～5分とすることが好ましく、1～2分とすることがさらに好ましい。30秒以下では結晶化が十分に進まず、5分以上では生産性が問題となるからである。

#### 【0036】

次いで、ポリ乳酸系ポリマー樹脂成形品を、金型から離型する。離型する際の温度は、成形温度と同じ、ポリ乳酸系ポリマーの結晶化温度範囲内、具体的には、約80～140℃とすることが好ましい。かかる温度で離型することにより、離型後のポリ乳酸系ポリマーの結晶化の進行を促進して、結晶化率の高いポリ乳酸系ポリマー樹脂成形品を得ることができると考えられるからである。

#### 【0037】

本発明にかかる第一の実施形態によれば、荷重たわみ温度が向上し、十分な耐熱性を有しているポリ乳酸系ポリマー樹脂成形品が得られる。また、第一の実施形態にかかるポリ乳酸系ポリマー樹脂成形品の製造方法によれば、生産性がよく、簡便な方法で、上述の特性を有するポリ乳酸系ポリマー樹脂成形品を得ることができるという利点がある。本実施形態の製造方法によれば、従来技術の問題であった成形時の不良も解決される。

#### 【0038】

本発明の第二の実施形態にかかるポリ乳酸系ポリマー樹脂組成物は、ポリ乳酸系ポリマーと、一般式(1)で示される構造のリン酸金属塩の少なくとも一種類に加え、充填剤をさらに含んでなるポリ乳酸系ポリマー樹脂組成物である。

#### 【0039】

ポリ乳酸系ポリマーとリン酸金属塩は、第一の実施形態において説明したものを使用することができるため、ここでは説明を省略する。充填剤は、無機質充填剤または有機質充填剤を使用することができ、好ましくは熱伝導率の低い充填剤を使用することができる。充填剤は、ポリ乳酸系ポリマー樹脂組成物の結晶化に伴う熱エネルギーの変化( $\Delta H$ )を向上させる働きをするため、熱伝導率の低い充填剤を使用することで、ポリ乳酸系ポリマーの冷却速度を低下させ、ポリ乳酸系ポリマーを長い時間結晶化温度領域に曝して、結晶化を促進することができると考えられるためである。

## 【0040】

熱伝導率の低い無機質充填剤としてはタルク、シリカ、炭酸カルシウム、硫酸バリウム、カオリンクレー、マイカ、モンモリロナイト、ケイ酸化合物、ガラス繊維、鉱物繊維などが挙げられるが、これらには限定されない。有機質充填剤としては黒鉛、カーボン繊維、有機繊維、木粉、竹粉などが挙げられるが、これらには限定されない。上記の充填剤は単独で用いてもよく二種類以上の充填剤の混合物として用いてもよい。

## 【0041】

また、充填剤は、ポリ乳酸系ポリマーに対し、0.1～50重量%となるように混合されていることが好ましく、1～5重量%となるように混合されていることがさらに好ましい。充填剤の添加量が多いほど、上述の $\Delta H$ を向上させ、結晶性の向上を図ることができるが、生分解性で植物由来の原料から製造される樹脂を製造する観点からは、充填剤の添加量は50重量%より少ないことが望ましいからである。

## 【0042】

充填剤を含むポリ乳酸系ポリマー樹脂成形品の製造方法は、上述の第一の実施形態にかかるポリ乳酸系ポリマー樹脂成形品の製造方法と同じ手順で実施することができ、最初に混練するステップにおいて、ポリ乳酸系ポリマー、リン酸金属塩に加え、充填剤を混練すればよい。充填剤は、ポリ乳酸系ポリマーに対し、0.1～50重量%となるように添加することができる。

## 【0043】

本発明にかかる第二の実施形態によれば、ポリ乳酸系ポリマー樹脂成形品の結晶性を向上させ、さらに耐熱性を付与したポリ乳酸系ポリマー樹脂成形品を得ることができるポリ乳酸系ポリマー樹脂組成物およびポリ乳酸系ポリマー樹脂成形品の製造方法を提供する。かかる高い耐熱性を付与したポリ乳酸系ポリマー樹脂成形品は、生分解性を有する特長と相まって、工業用部材としての有用性が高い。

## 【0044】

本発明の第三の実施形態にかかるポリ乳酸系ポリマー樹脂組成物は、ポリ乳酸

系ポリマーと、一般式（１）で示される構造のリン酸金属塩の少なくとも一種類と、充填剤とに加え、脂肪酸アミドをさらに含んでなるポリ乳酸系ポリマー樹脂組成物である。

#### 【0045】

ポリ乳酸系ポリマーとリン酸金属塩は、第一の実施形態において説明したものを、充填剤については、第二の実施形態において説明したものを使用することができるため、ここでは説明を省略する。脂肪酸アミドとしては、ステアリン酸アミド、オレイン酸アミド、エルカ酸アミド、ベヘン酸アミド、ラウリン酸アミドなどの長鎖アルキル脂肪酸アミドが挙げられるが、これらには限定されず、一般に滑剤として用いられる脂肪酸アミドを用いることができる。

#### 【0046】

また、脂肪酸アミドは、ポリ乳酸系ポリマーに対し、0.3～5.0重量%となるように混合されていることが好ましく、1.0～2.0重量%となるように混合されていることがさらに好ましい。脂肪酸アミドが、0.3重量%より少ないと脂肪酸アミドの添加による耐衝撃性の向上効果が十分得られず、2.0重量%より多いと、ポリ乳酸系ポリマー樹脂組成物を成形してできる樹脂成形品の表面性が悪くなるためである。

#### 【0047】

脂肪酸アミドをさらに含むポリ乳酸系ポリマー樹脂組成物の製造方法は、上述の第二の実施形態にかかるポリ乳酸系ポリマー樹脂成形品の製造方法とほぼ同じである。混練するステップにおいて、ポリ乳酸系ポリマー、リン酸金属塩、充填剤に加え、脂肪酸アミドとともに混練すればよい。脂肪酸アミドは、ポリ乳酸系ポリマーに対し、0.3～5.0重量%となるように添加することができる。

#### 【0048】

本発明にかかる第三の実施形態によれば、充填剤を添加することで結晶性を向上させたポリ乳酸系ポリマー樹脂成形品に耐衝撃性を付与し、さらに荷重たわみ温度をも上昇させて、耐熱性・耐衝撃性に優れた樹脂成形品を提供することができる。このような樹脂成形品は、自動車用部材として有用である。

#### 【0049】

#### [第四の実施形態]

本発明の第四の実施形態にかかるポリ乳酸系ポリマー樹脂成形品は、結晶化度が25%以上であって、該結晶の面間隔が5.2～5.5 Åであり、該結晶子サイズが400 Å以下である結晶構造を有する。

#### 【0050】

このようなポリ乳酸系ポリマー樹脂成形品は、上述の第一から第三のいずれかの実施形態におけるポリ乳酸系ポリマー樹脂組成物から上述の第一から第三のいずれかの実施形態において説明した方法を使用して製造することができる。上述の結晶化度、結晶の面間隔、結晶子サイズを有することは、所定の金型温度で成形したポリ乳酸系ポリマー樹脂成形品の結晶構造をX線回折により分析し、得られた回折チャートから所定のソフトウェアを使用して解析することで測定することができる。このような結晶解析の技術は当業者には既知の技術である。

#### 【0051】

本発明にかかる第四の実施形態によれば、所定の結晶構造を有する、耐熱性・耐衝撃性に優れたポリ乳酸系ポリマー樹脂成形品を提供することができる。このようなポリ乳酸系ポリマー樹脂成形品は、自動車用部材として有用である。

#### 【0052】

#### 【実施例】

以下に、本発明を、実施例を示してさらに詳細に説明する。以下の実施例は本発明を限定するものではない。以下の実施例および比較例では、ポリ乳酸系ポリマー樹脂組成物の組成と、成形時の金型温度を変化させて、ポリ乳酸系ポリマー樹脂成形品を製造し、その特性を評価した。全ての実施例および比較例に共通する混練方法、試験片の作製方法、試験方法は、以下のとおりである。

#### 【0053】

#### <材料の混練>

ポリ乳酸（株式会社島津製作所製、グレード：LACTY9030）又はポリ乳酸とポリブチレンサクシネート（昭和高分子株式会社製、グレード：ビオノーレ1020）を重量比で4：1の割合で混合したペレットに、リン酸金属塩（旭電化工業株式会社製、商品名：アデカスタブNA11、NA11SF、NA11

UF、NA21)又はリン酸金属塩でない核剤であるベンジリデンソルビトール誘導体(三井化学株式会社製、商品名:NC-4、又は新日本理化株式会社、商品名:ゲルオールDH)を所定の量で混合した。

#### 【0054】

これらの成分に加えて、充填剤を使用する場合には、充填剤であるタルク(松村産業株式会社製、ハイファイラー5000JP)又は黒鉛(エスイーシー株式会社製、SGP-3)又はシリカ(巴工業株式会社製、SF-CX)を所定の量で加え、混合した。さらに、脂肪酸アミドを使用する場合には、脂肪酸アミドであるステアリン酸アミド(和光純薬工業株式会社製)を所定の量で加え、混合した。このようにして得られた所定の混合物を、二軸押出機(株式会社神戸製鋼製)で混練温度を160℃から190℃として熔融混練し、ペレット化した。

#### 【0055】

##### <試験片の作製>

二軸押出機により混練し、ペレット化した材料を、熔融温度を180℃~200℃、金型温度を35℃~120℃として射出成形により、JISK7152-1に規定される試験片(80×10×4mm)を作製した。

#### 【0056】

##### <試験方法>

1) 荷重たわみ温度JISK7191に規定される試験方法により以下の条件で測定した。

##### [試験条件]

荷重0.45MPa(4.6kg/m<sup>2</sup>)

支持台、支点間距離64mm

支持台圧子の半径R=3.0mm

昇温速度2℃/min

標準たわみ0.34mm

#### 【0057】

2) 曲げ試験JISK7171に規定される試験方法により以下の条件で測定した。

## [試験条件]

支持台、圧子の半径  $R = 5.0 \text{ mm}$

曲げ速度  $2 \text{ mm/min}$

支点間距離  $64 \text{ mm}$

## 【0058】

3) シャルピー衝撃試験 J I S K 7 1 1 1 に規定される試験方法により試験片にノッチを入れ測定した。

## 【0059】

## [実施例 1]

ポリ乳酸 100 重量部に対して、リン酸 2, 2-メチレンビス (4, 6-ジ-tert ブチルフェニル) 水酸化アルミニウム (商品名: アデカスタブ NA 21、旭電化工業株式会社製) 又はリン酸 2, 2-メチレンビス (4, 6-ジ-tert ブチルフェニル) ナトリウム (商品名: アデカスタブ NA 11) を 0.5 又は 1.0 % 混合し、上述の混練方法でペレットを作製した。この材料を用いて上述の試験片の作製方法により、金型温度を  $100^{\circ}\text{C}$  又は  $110^{\circ}\text{C}$  又は  $120^{\circ}\text{C}$  とし、試験片を成形し、荷重たわみ温度を測定した。結果は表 1 に示した様に、荷重たわみ温度が十分に高くなっていた。

## 【0060】

## [比較例 1]

ポリ乳酸 100 重量部に対して、ゲルオール DH、又は NC-4 を 0.1、0.5、1.0 重量 % 混合し、上述の混練方法でペレットを作製した。この材料を用いて上述の試験片の作製方法により、金型温度を  $100^{\circ}\text{C}$  又は  $110^{\circ}\text{C}$  又は  $120^{\circ}\text{C}$  とし、試験片の成形を試みた。しかし、表 1 に示した様に、離型時に変形してしまい成形することができなかった。また、核剤無添加のポリ乳酸のみの材料についても成形することができなかった。

## 【0061】

【表 1】

ガラス転移温度以上での金型温度による荷重たわみ温度 (°C)

	核 剤	添 加 量 (wt%)	金型温度 100°Cの時	金型温度 110°Cの時	金型温度 120°Cの時
実施例 1	リン酸2,2-メチレンビス(4,6-ジ-tert ブチルフェニル)水酸化アルミニウム (アデカスタブ NA 2 1)	0.5	98.1	66.7	成形不可
		1.0	103.9	129.8	
	リン酸2,2-メチレンビス(4,6-ジ-tert ブチルフェニル)ナトリウム (アデカスタブ NA 1 1)	0.5	成形不可	58.8	58.7
		1.0		64.9	65.5
比較例 1	NC 4	0.1、0.5、1.0	成形不可	成形不可	成形不可
	ゲルオールDH	0.1、0.5、1.0	成形不可	成形不可	成形不可
	無添加 (ポリ乳酸のみ)	—	成形不可	成形不可	成形不可

## 【0062】

## [実施例 2]

アデカスタブ NA 1 1 (旭電化工業株式会社製)、又はアデカスタブ NA 2 1 をそれぞれ 0.1、0.5、1.0 重量% 混合し、上述の混練方法でペレットを作製した。この材料を用いて上述の試験片の作製方法により、金型温度を 35°C として試験片を成形し、荷重たわみ温度を測定した。結果は表 2 に示した様に、何れの核剤を用いても金型温度が 35°C では効果がなかった。

## 【0063】

## [比較例 2]

ポリ乳酸 100 重量部に対して、核剤を添加しないものと、核剤としてリン酸金属塩でないゲルオールDH (新日本理化株式会社製)、又は NC-4 (三井化学株式会社製)、をそれぞれ 0.1、0.5、1.0 重量% 混合し、上述の混練方法でペレットを作製した。この材料を用いて上述の試験片の作製方法により、金型温度を 35°C として試験片を成形し、荷重たわみ温度を測定した。結果は表 2 に示した様に、何れの核剤を用いても金型温度が 35°C では効果がなかった。

## 【0064】

【表 2】

ポリ乳酸メーカー推奨の金型温度（35℃）による荷重たわみ温度（℃）

	添加した核剤	核 剤 添 加 量			
		0wt%	0.1wt%	0.5wt%	1.0wt%
実施例2	アデカスタブNA11	—	54.2	54.1	54.2
	アデカスタブNA21		54.5	53.5	52.9
比較例2	NC4	—	54.0	54.1	54.0
	ゲルオールDH		54.6	54.2	54.1
	無添加	54.5	—	—	—

## 【0065】

## [実施例3]

ポリ乳酸100重量部に対して、図1に示した様に形状の異なる3種類のリン酸2，2-メチレンビス（4，6-ジ-tertブチルフェニル）ナトリウム（商品名：アデカスタブNA11、NA11SF、NA11UF）を1.0%混合し、上述の混練方法でペレットを作製した。この材料を用いて上述の試験片の作製方法により、金型温度を35℃又は100℃又は110℃として試験片を成形し、曲げ弾性率を測定した。結果は表3に示した様に、繊維状の形状のものを用いた時に最も曲げ弾性率が高かった。

## 【0066】

## [比較例3]

核剤無添加のポリ乳酸のみの材料を実施例3と同様に、金型温度を35℃又は100℃又は110℃として試験片を成形し、曲げ弾性率を測定した。結果は表3に示した様に、金型温度が100℃又は110℃では成形できず、また、ポリ乳酸のみの材料は最も曲げ弾性率が低かった。

## 【0067】



【表 3】

形状の異なるリン酸金属塩による曲げ弾性率 (MPa) の影響

	リン酸金属塩の形状	添加量 (wt%)	金型温度 35℃	金型温度 100℃	金型温度 110℃
実施例 3	繊維状と粒状の混合 (7 $\gamma$ -カステブ NA11)	1.0	3530	3480	3490
	粒状 (7 $\gamma$ -カステブ NA11SF)	1.0	3590	3690	3860
	繊維状 (7 $\gamma$ -カステブ NA11UF)	1.0	3650	3820	3980
比較例 3	無添加 (ポリ乳酸のみ)	—	3530	成形不可	成形不可

【0068】

## [実施例 4]

ポリ乳酸 100 重量部に対して、リン酸 2, 2-メチレンビス (4, 6-ジ-tert ブチルフェニル) 水酸化アルミニウム (商品名: アデカスタブ NA21、旭電化工業株式会社製) を 0.5 重量%、及び充填剤としてタルク (松村産業株式会社製、ハイフィラー 5000 JP) 又は黒鉛 (エスイーシー株式会社製、SGP-3) 又はシリカ (巴工業株式会社製、SF-CX) を 1.0 重量% 混合し、上述の混練方法でペレットを作製した。また、充填剤を無添加としたペレットを作製した。この材料を用いて上述の試験片の作製方法により、金型温度を 35℃ 又は 100℃ 又は 110℃ として試験片を成形し、荷重たわみ温度を測定した。結果は、図 2 に示す様に、充填剤を添加し、金型温度を 100℃ 又は 110℃ で成形すると、荷重たわみ温度が向上した。また、各材料の結晶化に伴う熱エネルギーの変化 ( $\Delta H$ ) を DSC (示差走査熱量分析、株式会社島津製作所製) により測定した。結果は表 4 に示した様に、充填剤を添加することにより、結晶化速度の指標である結晶化に伴う熱エネルギー変化 ( $\Delta H$ ) が向上していた。特にタルクで結晶性を向上させる効果が高かった。充填剤を無添加とした場合は、図 2 及び表 4 に示した様に、荷重たわみ温度及び  $\Delta H$  は最も低かった。

【0069】

【表 4】

充填剤による結晶性の効果

	充 填 剤	熱エネルギー変化 $\Delta H$ (J/g)
実施例 4	タルク (1.0wt%)	37.2
	黒鉛 (1.0wt%)	30.9
	シリカ (1.0wt%)	29.3
	無 添 加	24.6

【0070】

[実施例 5]

ポリ乳酸とポリブチレンサクシネート（ビオノーレ 1001、昭和高分子株式会社製）を重量比で 80：20 の割合で混合した樹脂 100 重量部に対して、リン酸 2，2-メチレンビス（4，6-ジ-*tert*-ブチルフェニル）水酸化アルミニウムを 0.3 重量%、充填剤としてタルクを 1.0 重量%、及び脂肪酸アミドとしてステアリン酸アミドを 0 又は 0.3 又は 1.5 重量% 混合し、上述の混練方法でペレットを作製した。この材料を用いて上述の試験片の作製方法により、金型温度を、35℃、100℃、110℃として試験片を成形し、荷重たわみ温度及びシャルピー衝撃値（JISK7111による）を測定した。結果は表 5 に示した様に、金型温度が 100℃、110℃の場合、ステアリン酸アミドを添加することで荷重たわみ温度が向上し、ステアリン酸アミドを 1.5 重量% 添加した時に、最も耐衝撃性が高かった。金型温度が 35℃の場合、ステアリン酸アミドが 1.5 重量%の時に耐衝撃性は向上したが、荷重たわみ温度は 51℃と低かった。

【0071】

【表 5】

ステアリン酸アミドによる耐衝撃性の効果

	ステアリン酸アミド添加量 (wt%)	金型温度 (°C)	シャルピー衝撃値 (kJ/m <sup>2</sup> )	荷重たわみ温度 (°C)
実施例 5	0	100	1.6	90.2
		110	1.6	97.1
	0.3	100	1.4	92.3
		110	1.4	104.6
	1.5	100	2.9	95.9
		110	3.2	97.7
	0	35	1.7	52.2
	0.3	35	1.6	51.2
	1.5	35	2.5	51.1

【0072】

## [実施例 6]

実施例 1、2、4、5 により作製したポリ乳酸系ポリマー樹脂成形品のうち、以下の表 6 に挙げた組成及び金型温度で成形した成形品の結晶構造を X 線回折（理学電機製 RINT2000）により分析した。表中、樹脂とは、ポリ乳酸系ポリマーをいい、PLA はポリ乳酸を、PBS はポリブチレンサクシネートをいう。また、得られた回折チャートより、結晶化度及び結晶子サイズを付属のソフト（ソフト名：JADE）により求めた。表 6 に示した結果から、荷重たわみ温度が向上した成形品は、結晶の面格子が 5.2～5.5 Å の結晶構造を持ち、その結晶サイズは 400 Å 以下であった。

【0073】

図 3 は、結晶の面格子が、5.2～5.5 Å の範囲にあるポリ乳酸系ポリマー樹脂成形品において、荷重たわみ温度と結晶化度との関係を示すグラフである。図 3 に示されるように、かかる温度範囲内のうち、特に結晶化度が 25% 以上であれば、荷重たわみ温度と結晶化度とのあいだに、 $R^2=0.8021$  となる相関関係があり、成形品の荷重たわみ温度は結晶化度に比例して向上した。したがって、このような結晶構造を有するポリ乳酸系ポリマー樹脂成形品は、耐熱性に

優れることがわかった。

【0074】

【表6】

X線回折による結晶構造

№	実施例 比較例 №	樹 脂	リン酸2,2-メチレンビス(4,6-ジ- tert'ブチルフェニル)水酸化アルミニウム 添 加 量	タルク 添加量	金型温度 (℃)	結晶子 サイズ(Å) <sup>(注)</sup>	結晶化度 (%)	荷重たわみ 温度(℃)
1	実施例2	P L A	0. 5 w t %	—	3 5	—	0	5 3. 5
2	実施例1				1 0 0	3 4 1	3 6. 7	9 8. 1
3					1 1 0	2 9 7	2 6. 8	6 6. 7
4	実施例2		1. 0 w t %	—	3 5	—	0	5 2. 9
5	実施例1				1 0 0	3 9 3	3 1. 5	6 8. 6
6					1 1 0	3 1 3	4 2. 1	1 2 9. 8
7	実施例4		0. 5 w t %	1.0wt%	3 5	—	1 3. 2	5 3. 4
8	実施例5	PLA80%	0. 3 w t %	1.0wt%	3 5	—	1 5. 9	5 2. 2
9		+			1 0 0	2 7 3	3 9. 1	9 0. 2
10		PBS20%			1 1 0	2 6 4	3 7. 1	9 7. 1

注) 面格子が5.2~5.5Åの結晶構造を持つ結晶子のサイズ。面格子が5.2~5.5Åの結晶構造を持たないものは「—」で示した。

【0075】

#### [実施例7]

ポリ乳酸系ポリマー樹脂組成物を所定の温度で成形し、X線回折（理学電機製 RINT2000）により分析した。実施例7では、100%のポリ乳酸からなるベース樹脂に、リン酸金属塩としてリン酸2,2-メチレンビス(4,6-ジ-tertブチルフェニル)水酸化アルミニウムを、ベース樹脂に対し、0.5重量%となるように加えたポリ乳酸系ポリマー樹脂組成物を調製した。これを、35℃で0秒にわたって成形したもの、100℃で90秒にわたって成形したもの、110℃で90秒時間にわたって成形したものについて、X線回折により分析した。分析結果を図4、5、6に示す。図4は35℃で、図5は100℃で、図6は110℃で、それぞれ成形した成形品のX線回折チャートである。35℃で成形したものは、結晶の生成を表すピークが見られず、35℃では良好な結晶性を有するポリ乳酸系ポリマー樹脂成形品が得られないことがわかった。

【0076】

#### [実施例8]

実施例7と同様の方法で、充填材を含むポリ乳酸系ポリマー樹脂組成物を所定

の温度で成形し、X線回折（理学電機製 RINT2000）により分析した。実施例 8 では、80 重量%のポリ乳酸と 20 重量%のポリブチレンサクシネート（昭和高分子株式会社製、ビオノーレ 1001）とからなるベース樹脂に、リン酸金属塩としてリン酸 2, 2-メチレンビス（4, 6-ジ-tert ブチルフェニル）水酸化アルミニウムを、ベース樹脂に対し 0.5 重量%となるように加え、充填材としてタルクを、ベース樹脂に対し 1 重量%となるように加えたポリ乳酸系ポリマー樹脂組成物を調製した。これを、35℃で 0 秒にわたって成形したもの、100℃で 90 秒にわたって成形したもの、110℃で 90 秒にわたって成形したものについて、X線回折により分析した。分析結果を図 7、8、9 に示す。図 7 は 35℃で、図 8 は 100℃で、図 9 は 110℃で成形した成形品の X線回折チャートである。実施例 7 と同様に、35℃で成形したものは、結晶の生成を表すピークが見られず、35℃では良好な結晶性を有するポリ乳酸系ポリマー樹脂成形品が得られないことがわかった。

#### 【0077】

本実施例及び比較例で示されたように、ポリ乳酸系ポリマーにリン酸金属塩を添加して所定の温度で成形したポリ乳酸系ポリマーは、荷重たわみ温度が上昇した。さらに、脂肪酸アミドの添加により耐衝撃性を付与することができた。

#### 【0078】

##### 【発明の効果】

自然の材料から製造することができ、環境適応性がある生分解性樹脂として知られるポリ乳酸系ポリマーに、核剤としてリン酸金属塩を添加することで、耐熱性を付与することができた。さらに、充填剤、脂肪酸アミドを添加することにより、耐熱性の向上につながる結晶化の促進を達成し、耐衝撃性をも付与した。これにより、従来、比較的熱に弱く、使用用途が限定されていたポリ乳酸系ポリマー樹脂を、約 80℃以上の耐熱性及び剛性を要する材料分野、特に自動車部品材料として用いられるポリ乳酸系ポリマー樹脂成形品として使用することができるようになった。また、本発明にかかるポリ乳酸系ポリマー樹脂組成物を用いてポリ乳酸系ポリマー樹脂成形品を製造する方法によれば、成形性がよく、簡易で生産性のよい製造が可能になる。

## 【図面の簡単な説明】

## 【図 1】

図 1 は、本発明の樹脂組成物に含まれるリン酸金属塩の電子顕微鏡写真を示すものである。図 1 A は、繊維状と粒状との混合したリン酸金属塩を、図 1 B は、粒状のリン酸金属塩を、図 1 C は、繊維状のリン酸金属塩を、それぞれ表す、1000 倍に拡大した電子顕微鏡写真である。

## 【図 2】

図 2 は、本発明の樹脂組成物に充填剤を添加することによる荷重たわみ温度への効果を示すグラフである。

## 【図 3】

図 3 は、本発明の樹脂組成物における結晶化度と荷重たわみ温度との相関を示すグラフである。

## 【図 4】

図 4 は、ポリ乳酸系ポリマー樹脂組成物を 35℃ で成形し、X 線回折により分析した結果を表す X 線回折チャートを示す図である。

## 【図 5】

図 5 は、ポリ乳酸系ポリマー樹脂組成物を 100℃ で成形し、X 線回折により分析した結果を表す X 線回折チャートを示す図である。

## 【図 6】

図 6 は、ポリ乳酸系ポリマー樹脂組成物を 110℃ で成形し、X 線回折により分析した結果を表す X 線回折チャートを示す図である。

## 【図 7】

図 7 は、充填材を含むポリ乳酸系ポリマー樹脂組成物を 35℃ で成形し、X 線回折により分析した結果を表す X 線回折チャートを示す図である。

## 【図 8】

図 8 は、充填材を含むポリ乳酸系ポリマー樹脂組成物を 100℃ で成形し、X 線回折により分析した結果を表す X 線回折チャートを示す図である。

## 【図 9】

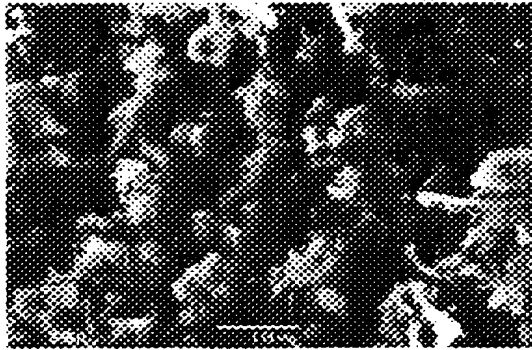
図 9 は、充填材を含むポリ乳酸系ポリマー樹脂組成物を 110℃ で成形し、X

線回折により分析した結果を表す X 線回折チャートを示す図である。

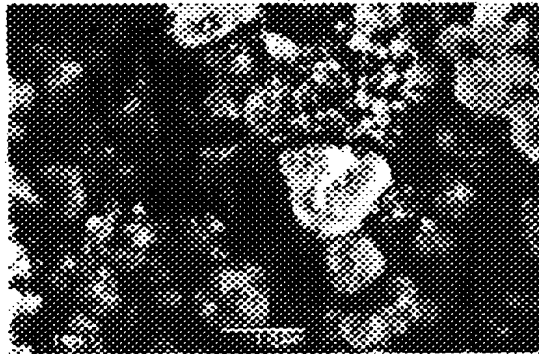
【書類名】

図面

【図 1】



(A)



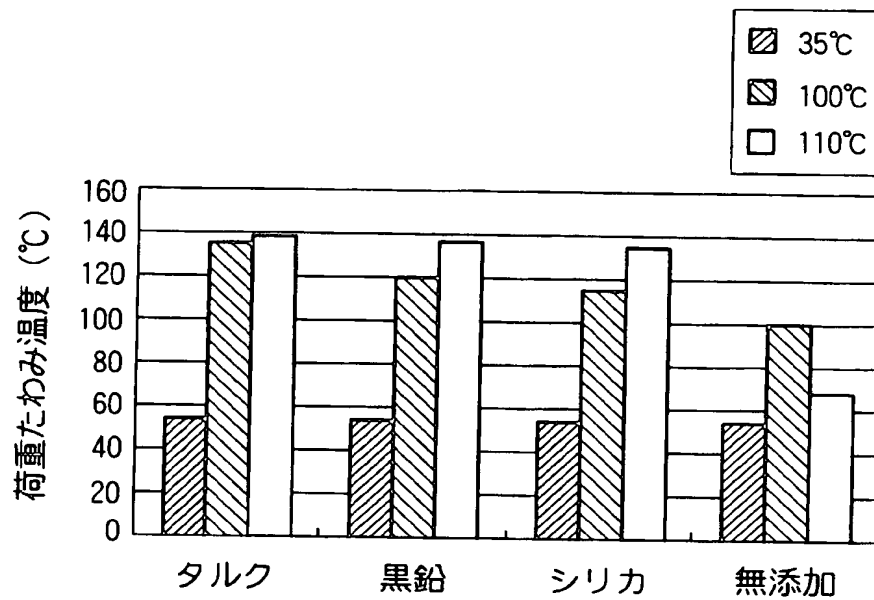
(B)



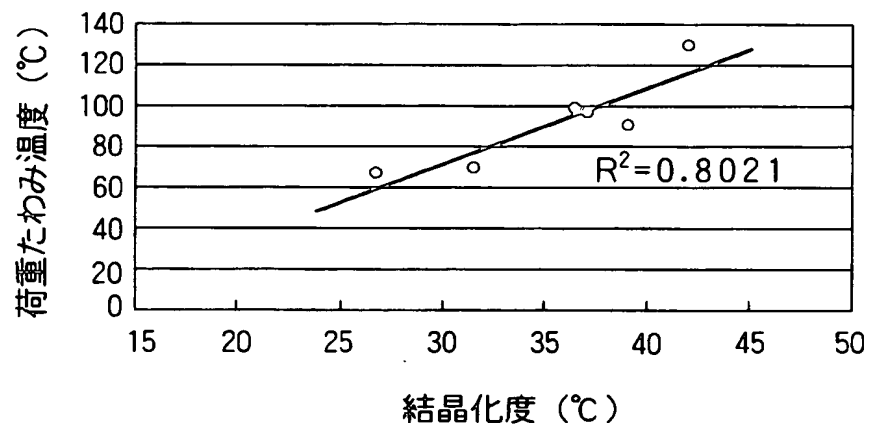
(C)



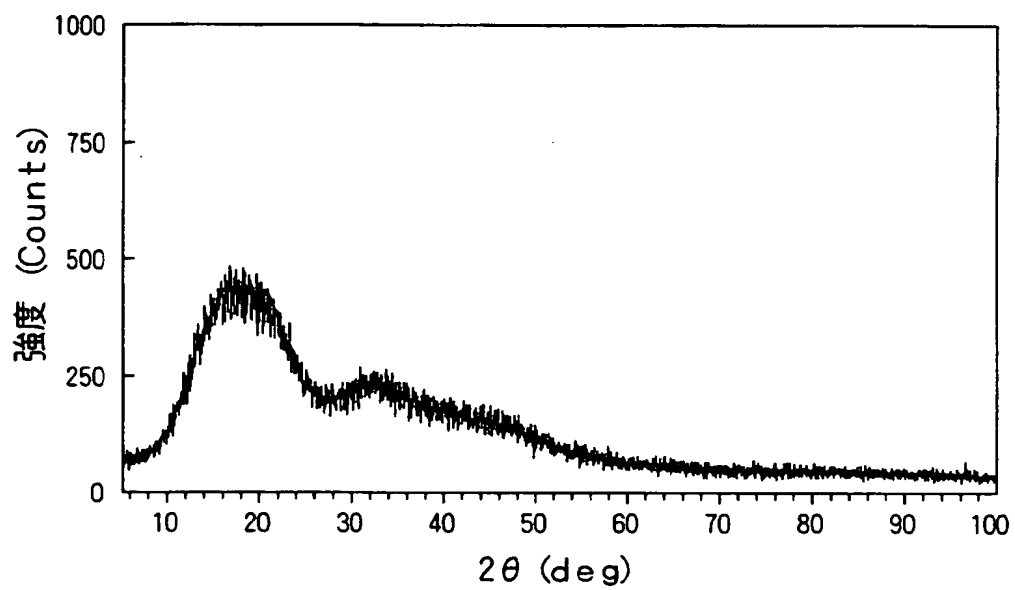
【図 2】



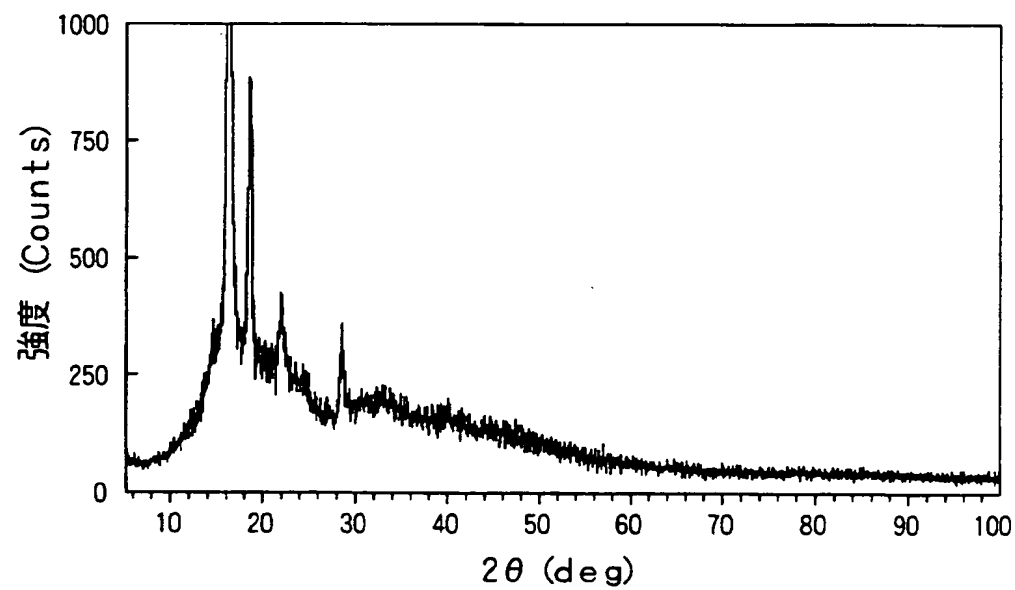
【図 3】



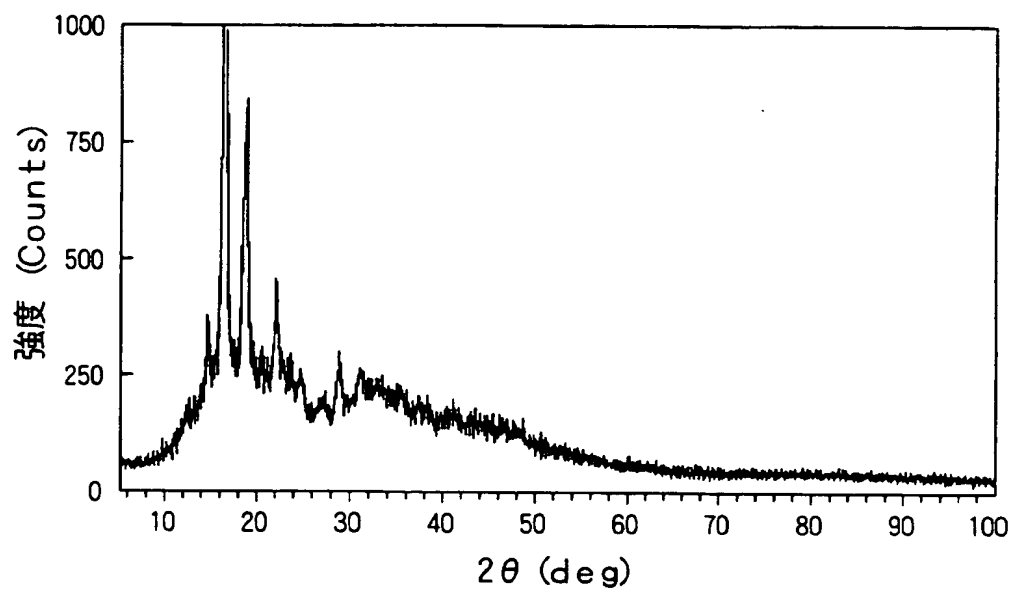
【図 4】



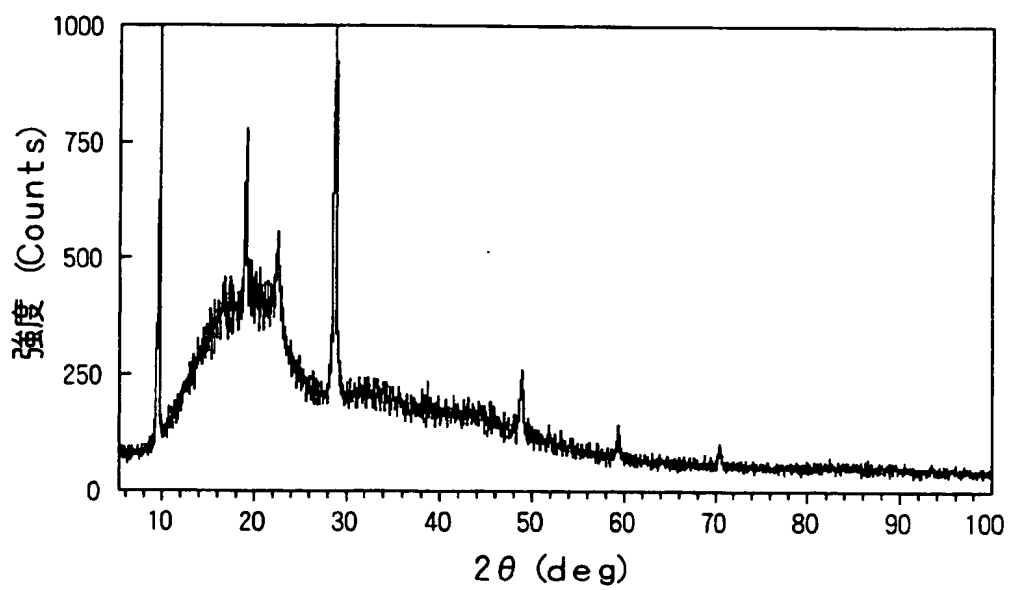
【図 5】



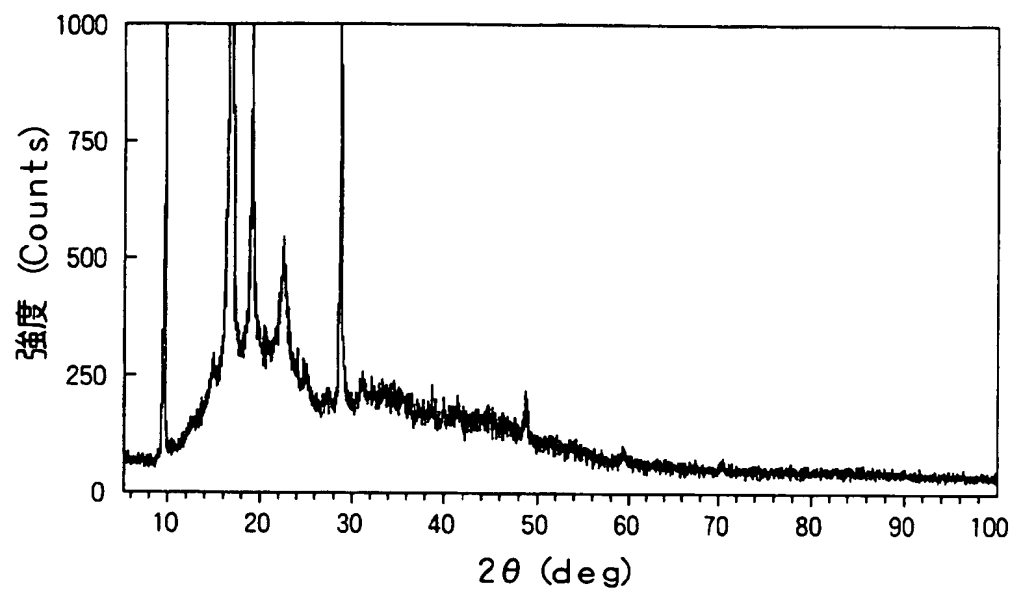
【図 6】



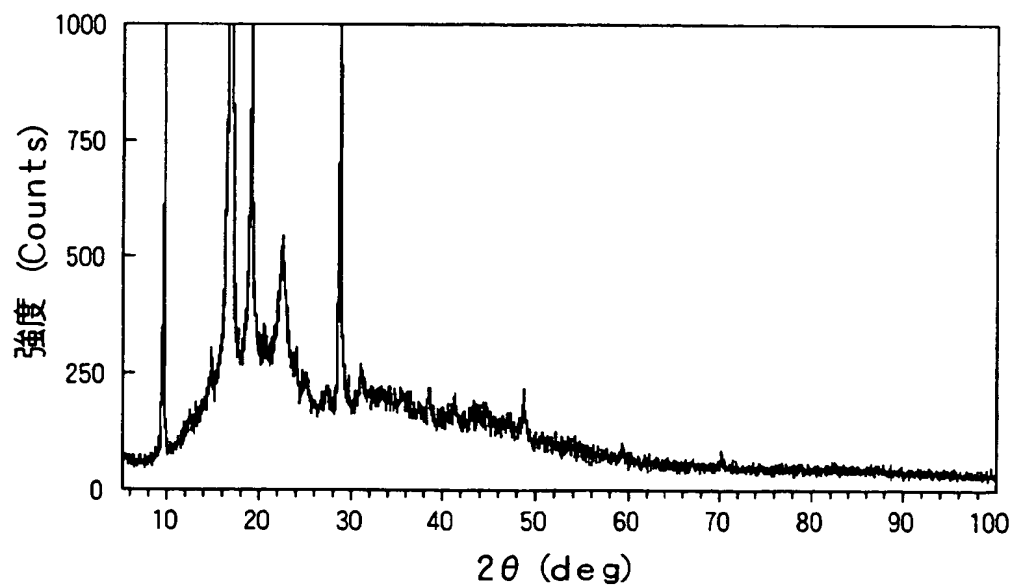
【図 7】



【図 8】



【図 9】



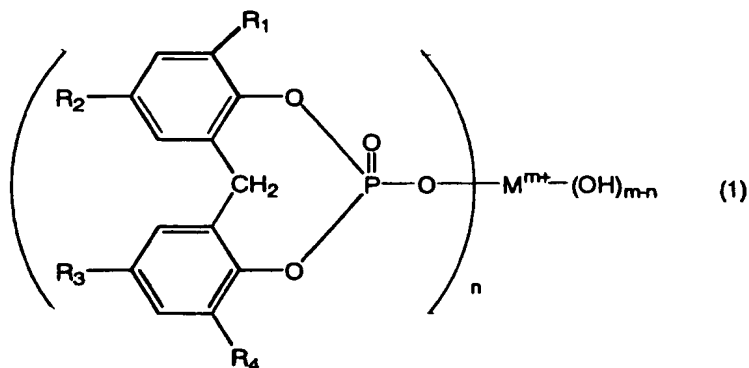
【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 生分解性を有するポリ乳酸系ポリマーに、さらに耐熱性や耐衝撃性などの特性を付与した樹脂組成物及びその成形方法を提供すること。

【解決手段】 ポリ乳酸系ポリマーと、一般式、

【化1】



(式中、 $\text{R}_1$ 、 $\text{R}_2$ 、 $\text{R}_3$ 、 $\text{R}_4$ は、同一もしくは異なってもよい水素又はアルキルを表す。 $\text{M}$ は金属原子を表し、 $m$ 、 $n$ は1～3の整数を表す。)で示される構造のリン酸金属塩の少なくとも一種類とを含んでなる樹脂組成物、および、ポリ乳酸系ポリマーと上記リン酸金属塩の少なくとも一種類とを金型に鋳込むステップと、前記金型を前記ポリ乳酸系ポリマーの結晶化温度範囲内として、成形するステップとを含んでなるポリ乳酸系ポリマー樹脂成形品の製造方法。

【選択図】 なし

認定・付加情報

特許出願の番号	特願 2 0 0 3 - 0 1 6 9 1 4
受付番号	5 0 3 0 0 1 1 9 3 0 1
書類名	特許願
担当官	第六担当上席 0 0 9 5
作成日	平成 1 5 年 1 月 2 8 日

< 認定情報・付加情報 >

【提出日】	平成15年 1月27日
-------	-------------

次頁無

特願 2 0 0 3 - 0 1 6 9 1 4

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号

[ 0 0 0 0 0 2 0 8 2 ]

1 . 変更年月日

1 9 9 1 年 4 月 2 7 日

[変更理由]

住所変更

住 所

静岡県浜松市高塚町 3 0 0 番地

氏 名

スズキ株式会社